

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 05-163510

(43)Date of publication of application : 29.06.1993

(51)Int.Cl.

B22F 9/04  
 B22F 1/00  
 C22C 33/02  
 C22C 38/00  
 H01F 1/053  
 H01F 1/06

(21)Application number : 03-349934

(71)Applicant : MITSUBISHI MATERIALS CORP

(22)Date of filing : 10.12.1991

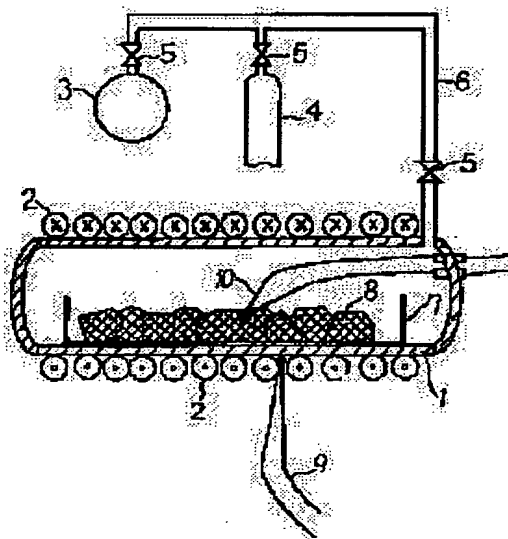
(72)Inventor : NAKAYAMA RYOJI  
 TAKESHITA TAKUO  
 ISHII YOSHINARI  
 OGAWA TAMOTSU

## (54) PRODUCTION OF RARE-EARTH MAGNETIC ALLOY POWDER

## (57)Abstract:

**PURPOSE:** To produce a stable rare-earth magnetic alloy powder excellent in magnetic characteristic at the time of hydrogenating and dehydrogenating a homogenized alloy of specified composition by controlling the temp. of the alloy with an external heater.

**CONSTITUTION:** An alloy consisting essentially of rare-earth elements including Y, Fe or partly Co-substituted Fe and B is soaked at 750-950° C, homogenized and crushed to obtain an angular crushed ingot 8 which is filled in a boat 7. The boat 7 is placed in the stainless steel tube 1 of a vacuum tube furnace, the tube is evacuated by an evacuating device 3 and filled with the hydrogen from a cylinder 4, and the tube is kept at 500° C with a heater 2 and a thermocouple 9 and then kept at 750-950° C to occlude hydrogen. The tube 1 is evacuated by the device 3, kept at 750-950° C with a thermocouple 10 and a heater 2 to forcibly discharge the hydrogen, and the crushed ingot is rapidly cooled in an inert atmosphere and crushed to obtain a rare-earth magnetic alloy powder.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 10.07.1997

[Date of sending the examiner's decision of rejection] 02.02.1999

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁(JP)

(12)公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平5-163510

(43)公開日 平成5年(1993)6月29日

(51)Int.Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	FI	技術表示箇所
B 2 2 F 9/04	E			
1/00	W			
C 2 2 C 33/02	J			
		7371-5E	H 0 1 F 1/ 04	H
		7371-5E	1/ 06	A

審査請求 未請求 請求項の数 2(全 5 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願平3-349934

(22)出願日 平成3年(1991)12月10日

(71)出願人 000006264

三菱マテリアル株式会社  
東京都千代田区大手町1丁目5番1号

(72)発明者 中山 亮治

埼玉県大宮市北袋町1-297 三菱マテリ  
アル株式会社中央研究所内

(72)発明者 武下 拓夫

埼玉県大宮市北袋町1-297 三菱マテリ  
アル株式会社中央研究所内

(72)発明者 石井 義成

埼玉県大宮市北袋町1-297 三菱マテリ  
アル株式会社中央研究所内

(74)代理人 弁理士 富田 和夫 (外1名)

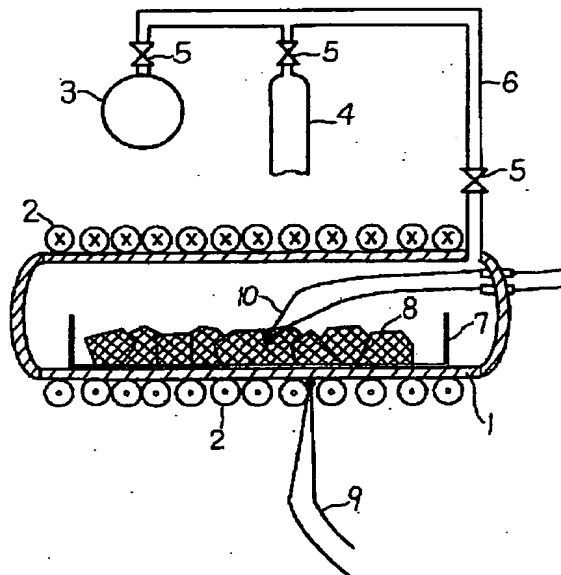
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 希土類磁石合金粉末の製造法

(57)【要約】

【目的】 安定して優れた磁気特性を有する水素処理法による希土類磁石合金粉末の製造法を提供する。

【構成】 均質化処理した希土類磁石合金インゴットを750～950℃の高温で水素吸蔵処理したのち脱水素処理し、ついで冷却したのち粉碎することにより希土類磁石合金粉末を製造する方法において、上記水素吸蔵処理および脱水素処理を真空管状炉内で行ない、かつ上記脱水素処理の吸熱反応に伴う温度低下を-50℃以内に抑えることを特徴とする希土類磁石合金粉末の製造法。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 Yを含む希土類元素（以下、Rで示す）とFeあるいはFeの一部をCoで置換した成分（以下、Tで示す）とBを主成分とする合金を、温度：600～1200℃に保持して均質化処理を行ない、上記均質化処理したRとTとBを主成分とする合金を、室温から500℃まで水素雰囲気中で昇温保持して合金に水素を吸蔵させ、さらに750～950℃の範囲内の所定の温度まで昇温後保持して合金に水素を吸蔵させて相変態を促し、引き続いて750～950℃の範囲内の真空雰囲気中に保持することにより上記水素吸蔵合金から強制的に水素を放出させて相変態を促す水素処理を施し、

ついで冷却し、粉砕することにより微細な強磁性相の再結晶集合組織を有する希土類磁石合金粉末を製造する方法において、

(a) 上記水素処理を真空管状炉内で行うこと、

(b) 上記750～950℃の範囲内の真空雰囲気中に保持することにより強制的に水素を放出させる際に、吸熱反応による合金の温度低下を-50℃以内におさえること、を特徴とする希土類磁石合金粉末の製造法。

【請求項2】 上記吸熱反応による合金の温度低下を-20℃以内におさえることを特徴とする請求項1記載の希土類磁石合金粉末の製造法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】この発明は、安定して優れた磁気特性を有する希土類磁石合金粉末の製造法に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】Yを含む希土類元素（以下、Rで示す）とFeあるいはFeの一部をCoで置換した成分（以下、Tで示す）とBを主成分とする合金を溶解してインゴットを作製し、このインゴットを温度：600～1200℃に保持して均質化処理を行ない、上記均質化処理したインゴットを蓄熱材と共に加熱保持炉に装入し、加熱保持炉内の雰囲気の水素雰囲気としたのち室温から500℃まで昇温保持して水素を吸蔵させ、さらに750～950℃の範囲内の所定の温度に昇温保持して水素を吸蔵させ、引き続いて750～950℃の範囲内の真空雰囲気中に保持することにより水素を強制的に放出させる水素処理を施し、ついで冷却し、粉砕することによりR-T-B系磁石合金粉末を製造する方法は知られている（必要ならば特開平2-4901号公報、特開平3-146608号公報参照）。

【0003】上記水素処理の工程で750～950℃の真空雰囲気中に保持し水素を強制的に放出させると相変態が吸熱反応のため、インゴットの温度低下が起こり磁気特性の低下をもたらす、これを避けるために上述のように従来は蓄熱材を入れて温度低下を防止していた。

## 【0004】

【発明が解決しようとする課題】しかし、上記従来の蓄熱材と共に水素処理する方法は、(a) 蓄熱材とインゴットが接触して加熱処理炉に装入されているときは、インゴットの温度低下を防止することができるが、インゴットの全ての面を蓄熱材と接触させることは困難で、蓄熱材と離れているインゴットが存在すると、このインゴットの温度低下は避けられず、磁気特性が低下する、(b) 蓄熱材を入れるために加熱処理炉の容積を大きくする必要があるが、加熱処理炉の容積を大きくすると水素雰囲気から真空雰囲気へ雰囲気交換のための時間がかかりすぎる上にインゴットの処理量に対する設備規模が大きくなり、生産性が向上しない、(c) 蓄熱材とインゴットをインゴット粉砕前に分離する必要があるが、分離工程中に蓄熱材の破片がインゴットに付着混入することがあり、上記蓄熱材破片の混入は磁気特性の低下をもたらす、などの課題があった。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】そこで、本発明者等は、かかる観点から蓄熱材を使用せずに少ないスペースで効率よく水素雰囲気から真空雰囲気に迅速交換し、得られた磁石粉末の磁気特性のバラツキがなく常に優れた磁気特性を保持させるべく研究を行った結果、(a) 加熱処理炉として真空管状炉を用いると処理物の温度追従性がよく、温度制御が容易に行えるので蓄熱材を使用しなくても温度低下を抑えることができる、(b) 脱水素の工程は、ほぼ真空雰囲気であるが、インゴットに脱水素による吸熱反応があっても、真空管状炉は輻射熱の効果が非常に大きく、その時のインゴットの温度低下を-50℃以内（好ましくは-20℃以内）に抑えることにより磁気特性の低下を防止することができる、などの知見を得たのである。

【0006】この発明は、かかる知見にもとづいてなされたものであって、インゴットを均質化処理し、水素吸蔵および脱水素の水素処理し、冷却したのち粉砕することによりR-T-B系磁石粉末を製造する方法において、上記水素処理を真空管状炉で行ない、かつ水素処理の脱水素による温度低下を-50℃以内に抑える希土類磁石合金粉末の製造法に特徴を有するものである。

【0007】この発明で用いる真空管状炉は、図1の断面概略図に示されているように、管状ステンレス製チューブ1の外周に温度調整のできるヒーター2が取り付けられている。

【0008】昇温から750～950℃で水素を吸蔵させる工程までは、ヒーター2の温度調整は管状ステンレス製チューブ1の外側にある熱電対9で行う。これはインゴット破砕角8が水素吸蔵を起こすと、急激な発熱で温度上昇するため、正確な炉内温度制御が困難となるためである。

【0009】脱水素時のインゴット破砕角8の温度低下

防止のための制御は、インゴット破砕角8に接触して取付けられているヒーター10の測定信号にもとづいてヒーター2の出力を調整することにより行われる。脱水素時のインゴット破砕角8の温度低下は上記管状ステンレス製チューブ1の外側に設けられた熱電対9では正確に測定することができないからである。上記管状ステンレス製チューブ1にはパイプ6により真空ポンプ3および水素ポンプ4が接続されており、管状ステンレス製チューブ1の内部はバルブ5の開閉により水素雰囲気または真空雰囲気に交換または保持される。

【0010】なお、上記脱水素による温度低下を抑えるには、真空管状炉の管状ステンレス製チューブ1の外側に設けた熱電対9の温度パターンを工夫する（例えば脱水素前後にヒーター2の制御温度を $+ \alpha^{\circ}\text{C}$ 高めるように設定することにより可能ではあるが、しかし $+ \alpha^{\circ}\text{C}$ の値はインゴット破砕角8の処理量、脱水素開始温度、合金組成等により大きく左右されるので、上記の如くインゴット破砕角8の脱水素時の温度制御はインゴット破砕角8に接触して取付けられている熱電対10の温度測定にもとづいて行う方が好ましい。また熱電対10は、1ヶ所だけでなく数ヶ所に設置してヒーター2の温度調整の精度を上げることができる。

【0011】上記方法で得られた磁石粉末をさらに必要に応じて300～1000℃の熱処理を行って磁気特性を向上させることもできる。

【0012】

【実施例】高周波溶解炉において、Nd:12.6at%、Co:17.2at%、B:6.5at%、Ga:0.3at%、Zr:0.1at%、残部:Feおよび不可避不純物からなる組成の合金を溶解し、鑄造してインゴットを作製し、このインゴットをAr雰囲気中、温度:1120℃、20時間保持の均質化処理を施し、ジョークラッシャーにて破砕し、直径約10～15mmの寸法を有する

インゴット破砕角を作製した。

【0013】上記インゴット破砕角8を図1に示されるようにボード7に充填し、ボード7と共に真空管状炉の管状ステンレス製チューブ1に装入し、真空装置3により真空引きしたのち、バルブ5を切替えて管状ステンレス製チューブ1内を1気圧の水素雰囲気とし、さらにその水素雰囲気圧力を保持しながらヒーター2に通電して昇温し、表1に示される温度に1時間保持して第1水素吸蔵処理し、さらに昇温して表1に示される温度に3時間保持して第2水素吸蔵処理を施した。

10

【0014】引き続き、表1に示す脱水素温度に設定後真空装置3を作動させ、管状ステンレスチューブ1内の水素の吸引排出を開始し、インゴット破砕角8の付近にセットした熱電対10の温度が最大表1に示される温度低下幅に抑制するようにヒーター2を出力調整し、 $1 \times 10^{-1} \text{ Torr}$ 以下の真空雰囲気になるまで真空引きを行った後、Ar雰囲気中で急冷し、本発明法1～7および比較法1～2を行った。

20

【0015】さらに、比較のために、上記インゴット破砕角を通常の真空ボックス内に蓄熱材から離して載置し、脱水素時の温度低下を防止するようにして従来法を行った。

【0016】上記本発明法1～7、比較法1～2および従来法により水素処理したインゴット破砕角を400 $\mu\text{m}$ 以下に粉碎して磁石粉末を製造し、この磁石粉末を2.5wt%のエポキシ樹脂と混合し、20kOeの横磁場中にて圧縮成形し、150℃、3時間保持の熱硬化処理を施し、密度:5.95～6.00g/cm<sup>3</sup>の異方性ボンド磁石を作製し、このボンド磁石の磁気特性を表1に示した。

30

【0017】

【表1】

種 別	第1次水素 吸蔵処理 温度 (°C)	第2次水素 吸蔵処理 温度 (°C)	脱水素処 理開始温度 (°C)	脱水素吸蔵 反応による 温度低下 (°C)	ポンド磁石の磁気特性		
					B <sub>r</sub> (KG)	i H <sub>c</sub> (kOe)	BH <sub>max</sub> (MGOe)
1	250	750	760	-2	8.8	15.2	17.5
2	300	800	800	-5	9.0	15.0	18.1
3	300	850	850	-2	9.2	14.5	18.7
4	300	850	850	-10	9.1	14.8	18.4
5	300	850	840	-30	8.8	13.8	17.0
6	300	880	880	-50	8.7	13.4	16.2
7	400	950	950	-20	9.1	13.0	16.8
1	300	850	850	-62*	8.5	10.1	13.1
2	300	800	820	-106*	6.5	6.8	5.7
従来法	300	850	850	-123*	8.4	9.6	12.5

(\*印は、この発明の範囲外の値)

## 【0018】

【発明の効果】表1の結果から、脱水素時の温度低下を-50°C以内に抑える本発明法1~7により作製した希土類磁石合金粉末は、従来の蓄熱材を使用して温度低下を抑える従来法により作製した希土類磁石合金粉末よりも磁気特性が優れており、また脱水素時の温度低下が-50°Cを超える比較法1~2より作製された希土類磁石合金粉末よりも磁気特性が大幅に優れていることがわかる。

【0019】この発明の製造法によると、蓄熱材を使用することなく希土類磁石粉末を製造することができるので、従来法の如く蓄熱材とインゴットを分離する必要がなく、効率よく希土類磁石粉末を製造することができるので工業生産には優れた効果をもたらすものである。

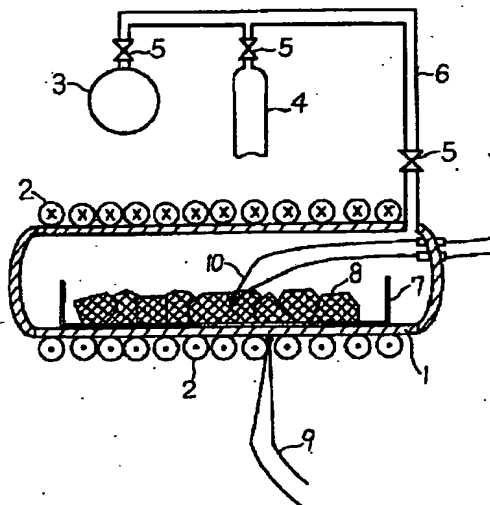
## 【図面の簡単な説明】

【図1】この発明で用いる真空管状炉の断面概略図である。

## 【符号の説明】

- 1 管状ステンレス製チューブ
- 2 ヒーター
- 3 真空ポンプ
- 4 水素ボンベ
- 5 バルブ
- 6 パイプ
- 7 ボード
- 8 インゴット破砕角
- 9 熱電対
- 10 熱電対

【図1】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.<sup>5</sup>

C 2 2 C 38/00

H 0 1 F 1/053

1/06

識別記号

3 0 3 D 7325-4K

弁内整理番号

F I

技術表示箇所

(72)発明者 小川 保

埼玉県大宮市北袋町1-297 三菱マテリ

アル株式会社中央研究所内